

(12) NACH DEM VERTRÄG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



10/531981

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
21. Mai 2004 (21.05.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/041825 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C07D 487/04

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/012277

(22) Internationales Anmeldedatum:
4. November 2003 (04.11.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
102 52 261.8 7. November 2002 (07.11.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Carl-Bosch-Strasse, 67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): TORMO I BLASCO, Jordi [DE/DE]; Carl-Benz-Str. 10-3, 69514 Laudenbach (DE). BLETTNER, Carsten [DE/DE]; Richard-Wagner-Str. 48, 68165 Mannheim (DE). MÜLLER, Bernd [DE/DE]; Stockingerstr.7, 67227 Frankenthal (DE). GEWEHR, Markus [DE/DE]; Goethestr.21, 56288 Kastellaun (DE). GRAMMENOS, Wassilos [DE/DE]; Alexander-Fleming-Str. 13, 67071 Ludwigshafen (DE). GROTE, Thomas [DE/DE]; Im Hoehnhausen 18, 67157 Wachenheim (DE). GYPSER, Andreas [DE/DE]; B 4

4, 68159 Mannheim (DE). RHEINHEIMER, Joachim [DE/DE]; Merziger Str.24, 67063 Ludwigshafen (DE). SCHÄFER, Peter [DE/DE]; Römerstr.1, 67308 Ottersheim (DE). SCHIEWECK, Frank [DE/DE]; Lindenweg 4, 67258 Hessheim (DE). SCHWÖGLER, Anja [DE/DE]; Heinrich-Lanz-Str. 3, 68165 Mannheim (DE). AMMERMANN, Eberhard [DE/DE]; Von-Gagern-Str.2, 64646 Heppenheim (DE). STRATHMANN, Siegfried [DE/DE]; Donnersbergstr.9, 67117 Limburgerhof (DE). SCHÖFL, Ulrich [DE/DE]; Luftschifftring 22c, 68782 Brühl (DE). STIERL, Reinhard [DE/DE]; Jahnstr. 8, 67251 Freinsheim (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGESELLSCHAFT; Carl-Bosch-Strasse 38, 67056 Ludwigshafen (DE).

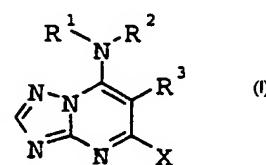
(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: 5-ALKYL-7-AMINOTRIAZOLOPYRIMIDINES, METHODS AND INTERMEDIARY PRODUCTS NECESSARY FOR THE PRODUCTION THEREOF, AGENTS CONTAINING SAID COMPOUNDS AND THE USE THEREOF FOR FIGHTING AGAINST HARMFUL MUSHROOMS

(54) Bezeichnung: 5-ALKYL-7-AMINOTRIAZOLOPYRIMIDINE, VERFAHREN UND ZWISCHENPRODUKTE ZU IHRER HERSTELLUNG, SIE ENTHALTENDE MITTEL SOWIE IHRE VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG VON SCHADPILZEN



(57) Abstract: The invention relates to 5-alkyl-7-aminotriazolo[4,3-d]pyrimidines of the formula (I) and to the salts thereof. In said formula substituents have the following meanings: R¹ and R² each is a hydrogen atom or a group of alkyl, alkenyl, alkynyl, haloalkyl, cycloalkyl, phenyl or naphtyle, saturated, unsaturated or aromatic heterocycle having from five to six members which contain from one to four nitrogen atoms or one to three nitrogen atoms and one sulfur or oxygen atom, or R¹ and R² can form together with a connecting them nitrogen atom a cycle of 5 to 6 members containing from one to four nitrogen atoms or from one to three nitrogen atoms and one sulfur or oxygen atom, R³ is a cycloalkyl or bicycloalkyl group, R¹, R² and R³ can be substituted in conformity with a description, and X is an alkyl or alkyl halide group. The inventive methods and intermediary products necessary for producing said compounds, agents containing them and the use thereof for fighting against harmful mushrooms are also disclosed.

(57) Zusammenfassung: 5-Alkyl-7-aminotriazolo[4,3-d]pyrimidine der Formel (I) in der die Substituenten die folgenden Bedeutungen haben: R¹, R² Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Haloalkyl, Cycloalkyl, Phenyl, Naphthyl; 5- oder 6-gliedriges gesättigtes, ungesättigtes oder aromatisches Heterocycl, enthaltend ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom; oder R¹ und R² können zusammen mit dem Stickstoffatom, das sie verbindet, einen 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom enthält; R³ Cycloalkyl oder Bicycloalkyl; wobei R¹, R² und R³ gemäß der Beschreibung substituiert sein können; X Alkyl oder Halogenalkyl; sowie deren Salze; Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung, sie enthaltende Mittel und ihre Verwendung zur Bekämpfung von phytopathogenen Schadpilzen.

WO 2004/041825 A1



ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht*

— vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine, Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung, sie enthaltende Mittel sowie ihre Verwendung zur Bekämpfung von Schadpilzen

5

Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine der Formel I,

10



15 in der die Substituenten die folgenden Bedeutungen haben:

R¹, R² Wasserstoff, C₁-C₁₀-Alkyl, C₂-C₁₀-Alkenyl, C₂-C₁₀-Alkinyl, C₁-C₁₀-Haloalkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl, Phenyl, Naphthyl; oder

20

5- oder 6-gliedriges gesättigtes, ungesättigtes oder aromatisches Heterocyclyl, enthaltend ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom; oder

25

R¹ und R² können zusammen mit dem Stickstoffatom, das sie verbindet, einen 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom enthält;

30

R¹ und R² können, wenn ungleich Wasserstoff, unabhängig voneinander teilweise oder vollständig halogeniert sein und/oder einen bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen

35

R^a Cyano, Nitro, Hydroxy, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Haloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Haloalkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylamino, Di-C₁-C₆-alkylamino, C₂-C₆-Alkenyl, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyl, C₃-C₆-Alkinyloxy und gegebenenfalls halogeniertes Oxy-C₁-C₄-alkylenoxy;

40

wobei diese aliphatischen, alicyclischen oder aromatischen Gruppen ihrerseits partiell oder vollständig halogeniert sein oder eine bis drei Gruppen R^b tragen können:

45

R^b Halogen, Cyano, Nitro, Hydroxy, Mercapto, Amino, Carboxyl, Aminocarbonyl, Aminothiocarbonyl, Alkyl,

2

und/oder einen bis drei der folgenden Reste:

25 R³ C₃-C₁₄-Cycloalkyl oder C₆-C₁₄-Bicycloalkyl, wobei R³ unsubstituiert oder teilweise oder vollständig halogeniert sein kann und/oder ein bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen kann; und

30 X C₁-C₆-Alkyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl:

sowie deren Salze.

35 Zusätzlich betrifft die Erfindung Verfahren und Zwischenprodukte zur Herstellung der Verbindungen I, sowie Mittel und die Verwendung der Verbindungen I zur Bekämpfung von phytopathogenen Schadpilzen.

40 6-Aryl-Triazolopyrimidine werden in WO 98/46608 und EP-A 550 113
offenbart. Durch aromatische Gruppen speziell substituierte
6-Benzyl-Triazolopyrimidine mit pharmazeutischer Wirkung sind aus
US 5,231,094 und US 5,387,747 bekannt. EP-A 141 317 offenbart
6-Aryl- und 6-Arylalkyl-7-aminotriazolopyrimidine, welche in
45 5-Position einen Alkylrest tragen können. 6-Cycloalkyltriazolopy-
rimidine mit diversen Resten in 5-Position werden in EP-A 613 900

genannt. 5-Alkyl-6-phenyl-7-aminotriazolopyrimidine sind aus US 5,994,360 bekannt.

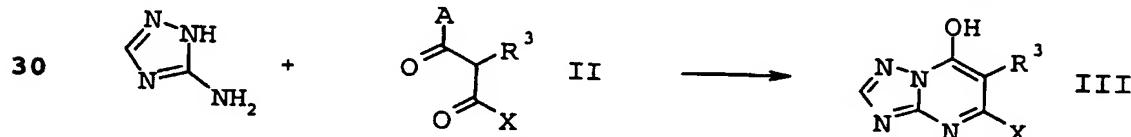
Die in WO 98/46608, EP-A 550 113, EP-A 141 317, EP-A 613 900 und 5 US 5,994,360 beschriebenen Verbindungen sind als Pflanzenschutzmittel gegen Schadpilze geeignet.

Ihre Wirkung ist jedoch in vielen Fällen nicht zufriedenstellend. Daher lag als Aufgabe zugrunde, Verbindungen mit verbesserter 10 Wirksamkeit zu finden.

Demgemäß wurden die 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine der Formel I gefunden. Weiterhin wurden Zwischenprodukte und Verfahren zur Herstellung der Verbindungen I, sowie die Verwendung der Verbindungen I und diese enthaltende Mittel zur Bekämpfung von phytopathogenen Schadpilzen gefunden.

Die Verbindungen der Formel I unterscheiden sich von den aus den oben genannten Schriften bekannten Verbindungen durch die Kombination der 5-Alkylgruppe mit der als mono- oder bicyclisches Cycloalkyl ausgestalteten Gruppe R³ am Triazolopyrimidingerüst.

7-Aminotriazolopyrimidine der Formel I, sind vorteilhaft erhältlich durch Umsetzung von 3-Amino-1,2,4-triazol mit Dicarbonylverbindungen der Formel II, wobei A für C₁-C₁₀-Alkoxy, insbesondere für C₁-C₄-Alkyl steht und R³ und X wie für Formel I definiert sind, zu 7-Hydroxytriazolopyrimidinen der Formel III:



Diese Umsetzung erfolgt üblicherweise bei Temperaturen von 25°C bis 210°C, vorzugsweise 120°C bis 180°C, in Gegenwart einer Base [vgl. EP-A-770 615].

35

Als Basen kommen allgemein organische Basen, z.B. tertiäre Amine wie Trimethylamin, Triethylamin, Triisopropylethylamin, Tributylamin und N-Methylpiperidin, Pyridin in Betracht. Besonders bevorzugt werden Triethylamin und Tributylamin.

40

Die Basen werden im allgemeinen in katalytischen Mengen eingesetzt, sie können aber auch äquimolar, im Überschuß oder gegebenenfalls als Lösungsmittel verwendet werden.

45

Die Edukte werden im allgemeinen in äquimolaren Mengen miteinander umgesetzt. Es kann für die Ausbeute vorteilhaft sein, II in einem Überschuß bezogen auf das Aminotriazol einzusetzen.

5 Die für die Herstellung der Verbindungen I benötigten Ausgangsstoffe sind in der Literatur bekannt oder können gemäß der zitierten Literatur hergestellt werden [Heterocycl. 1996, S.1031; Tetrahedron Lett. 1966, Bd.24, S.2661; Chem. Pharm. Bull. 1961, S.801] oder sind kommerziell zugänglich.

10

Anschließend setzt man die 7-Hydroxytriazolopyrimidine der Formel III mit einem Halogenierungsmittel zu 7-Halogentriazolopyrimidinen der Formel IV um:

15



Diese Umsetzung erfolgt üblicherweise bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise 80°C bis 125°C, in einem inerten organischen

20 Lösungsmittel oder ohne Lösungsmittel [vgl. EP-A-770 615].

Als Halogenierungsmittel kommen bevorzugt Bromierungs- oder Chlorierungsmittel, wie beispielsweise Phosphoroxybromid oder Phosphoroxychlorid, in Substanz oder in Anwesenheit eines Lösungsmittels in Frage.

Geeignete Lösungsmittel sind aliphatische Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Cyclohexan und Petrolether, aromatische Kohlenwasserstoffe wie Toluol, o-, m- und p-Xylol, besonders bevorzugt 30 Toluol, o-, m- und p-Xylol. Es können auch Gemische der genannten Lösungsmittel verwendet werden.

Die Halogentriazolopyrimidine der Formel IV werden mit einem Amin der Formel V zu 7-Aminotriazolopyrimidinen der Formel I umgesetzt.



40 Diese Umsetzung erfolgt üblicherweise bei Temperaturen von 0°C bis 70°C, vorzugsweise 10°C bis 35°C, in einem inerten organischen Lösungsmittel in Gegenwart einer Base [vgl. EP-A 550 113].

Geeignete Lösungsmittel sind aromatische Kohlenwasserstoffe wie 45 Toluol, o-, m- und p-Xylol, halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Methylenechlorid, Chloroform und Chlorbenzol, Ether wie Diethyl-

ether, Diisopropylether, tert.-Butylmethylether, Dioxan, Anisol und Tetrahydrofuran.

Als Basen kommen allgemein anorganische Verbindungen wie Alkali-
5 metall- und Erdalkalimetallhydroxide, Alkalimetall- und Erdalka-
limetalloxide, Alkalimetall- und Erdalkalimetallhydride,
Alkalimetallamide, Alkalimetall- und Erdalkalimetallcarbonate wie
Lithiumcarbonat, Kaliumcarbonat und Calciumcarbonat sowie Alkali-
metallhydrogencarbonate wie Natriumhydrogencarbonat, metallorga-
10 nische Verbindungen, insbesondere Alkalimetallalkyle, Alkylmagne-
siumhalogenide sowie Alkalimetall- und Erdalkalimetallalkoholate
und Dimethoxymagnesium, außerdem organische Basen, z.B. tertiäre
Amine wie Trimethylamin, Triethylamin, Tri-isopropylethylamin und
N-Methylpiperidin, Pyridin, substituierte Pyridine sowie bicycli-
15 sche Amine in Betracht. Besonders bevorzugt werden Triethylamin,
Kaliumcarbonat und Natriumcarbonat.

Die Basen werden im allgemeinen in katalytischen Mengen einge-
setzt, sie können aber auch äquimolar, im Überschuß oder gegebe-
20 nenfalls als Lösungsmittel verwendet werden. Alternativ dazu kann
ein Überschuß der Verbindung V als Base dienen.

Die Edukte werden im allgemeinen in äquimolaren Mengen miteinan-
der umgesetzt. Es kann für die Ausbeute vorteilhaft sein, V in
25 einem Überschuß bezogen auf IV einzusetzen.

Die Reaktionsgemische werden in üblicher Weise aufgearbeitet,
z.B. durch Mischen mit Wasser, Trennung der Phasen und gegebenen-
falls chromatographische Reinigung der Rohprodukte. Die Zwischen-
30 und Endprodukte fallen z.T. in Form farbloser oder schwach bräun-
licher, zäher Öle an, die unter verminderter Druck und bei mäßig
erhöhter Temperatur von flüchtigen Anteilen befreit oder gerei-
nigt werden. Sofern die Zwischen- und Endprodukte als Feststoffe
erhalten werden, kann die Reinigung auch durch Umkristallisieren
35 oder Digerieren erfolgen.

Sofern einzelne Verbindungen I nicht auf den voranstehend be-
schriebenen Wegen zugänglich sind, können sie durch Derivatisie-
zung anderer Verbindungen I hergestellt werden.

40 7-Hydroxy- und 7-Halogentriazolopyrimidine der Formeln III und
IV, wobei X und R³ die Bedeutung wie in Formel I hat und Hal Hal-
ogen, insbesondere Chlor oder Brom bedeutet, sind neu.

Bei den in den vorstehenden Formeln angegebenen Definitionen der Symbole wurden Sammelbegriffe verwendet, die allgemein repräsentativ für die folgenden Substituenten stehen:

5 **Halogen:** Fluor, Chlor, Brom und Jod;

Alkyl: gesättigte, geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 4, 6, 8 oder 10 Kohlenstoffatomen, z.B. C₁-C₆-Alkyl wie Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl,

10 1-Methyl-propyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 2,2-Di-methylpropyl, 1-Ethylpropyl, Hexyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Di-15 methylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl und 1-Ethyl-2-methylpropyl;

Haloalkyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 10

20 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), wobei in diesen Gruppen teilweise, beispielsweise ein- bis dreifach, oder vollständig die Wasserstoffatome durch Halogenatome wie vorstehend genannt ersetzt sein können, z.B. C₁-C₂-Halogenalkyl wie Chlormethyl, Brommethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Fluormethyl, Difluor-25 methyl, Trifluormethyl, Chlorfluormethyl, Dichlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, 1-Chlorethyl, 1-Bromethyl, 1-Fluorethyl, 2-Fluorethyl, 2,2-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 2-Chlor-2-fluorethyl, 2-Chlor-2,2-difluorethyl, 2,2-Dichlor-2-fluorethyl, 2,2,2-Trichlorethyl und Pentafluorethyl;

30 **Alkenyl:** ungesättigte, geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffreste mit 2 bis 6 oder 10 Kohlenstoffatomen und einer Doppelbindung in einer beliebigen Position, z.B. C₂-C₆-Alkenyl wie Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Butenyl, 35 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 1-Pentenyl, 2-Pentenyl, 3-Pentenyl, 4-Pentenyl, 1-Methyl-1-butenyl, 2-Methyl-1-butenyl, 3-Methyl-1-butenyl, 1-Methyl-2-butenyl, 2-Methyl-2-butenyl, 3-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-3-butenyl, 2-Methyl-3-butenyl, 40 3-Methyl-3-butenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl, 1,2-Dimethyl-1-propenyl, 1,2-Dimethyl-2-propenyl, 1-Ethyl-1-propenyl, 1-Ethyl-2-propenyl, 1-Hexenyl, 2-Hexenyl, 3-Hexenyl, 4-Hexenyl, 5-Hexenyl, 1-Methyl-1-pentenyl, 2-Methyl-1-pentenyl, 3-Methyl-1-pentenyl, 4-Methyl-1-pentenyl, 1-Methyl-2-pentenyl, 2-Methyl-2-pentenyl, 45 3-Methyl-2-pentenyl, 4-Methyl-2-pentenyl, 1-Methyl-3-pentenyl, 2-Methyl-3-pentenyl, 3-Methyl-3-pentenyl, 4-Methyl-3-pentenyl, 1-Methyl-4-pentenyl, 2-Methyl-4-pentenyl, 3-Methyl-4-pentenyl,

4-Methyl-4-pentenyl, 1,1-Dimethyl-2-butenyl, 1,1-Dimethyl-3-butenyl, 1,2-Dimethyl-1-butenyl, 1,2-Dimethyl-2-butenyl, 1,2-Dimethyl-3-butenyl, 1,3-Dimethyl-1-butenyl, 1,3-Dimethyl-2-butenyl, 1,3-Dimethyl-3-butenyl, 2,2-Dimethyl-3-butenyl, 2,3-Dimethyl-1-butenyl, 2,3-Dimethyl-2-butenyl, 2,3-Dimethyl-3-butenyl, 3,3-Dimethyl-1-butenyl, 3,3-Dimethyl-2-butenyl, 1-Ethyl-1-butenyl, 1-Ethyl-2-butenyl, 1-Ethyl-3-butenyl, 2-Ethyl-1-butenyl, 2-Ethyl-2-butenyl, 2-Ethyl-3-butenyl, 1,1,2-Trimethyl-2-propenyl, 1-Ethyl-1-methyl-2-propenyl, 1-Ethyl-2-methyl-1-propenyl und

10 1-Ethyl-2-methyl-2-propenyl;

Alkinyl: geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 2 bis 6 oder 10 Kohlenstoffatomen und einer Dreifachbindung in einer beliebigen Position, z.B. C₂-C₆-Alkinyl wie Ethinyl,

15 1-Propinyl, 2-Propinyl, 1-Butinyl, 2-Butinyl, 3-Butinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1-Pentinyl, 2-Pentinyl, 3-Pentinyl, 4-Pentinyl, 1-Methyl-2-butinyl, 1-Methyl-3-butinyl, 2-Methyl-3-butinyl, 3-Methyl-1-butinyl, 1,1-Dimethyl-2-propinyl, 1-Ethyl-2-propinyl, 1-Hexinyl, 2-Hexinyl, 3-Hexinyl, 4-Hexinyl, 5-Hexinyl,

20 1-Methyl-2-pentinyl, 1-Methyl-3-pentinyl, 1-Methyl-4-pentinyl, 2-Methyl-3-pentinyl, 2-Methyl-4-pentinyl, 3-Methyl-1-pentinyl, 3-Methyl-4-pentinyl, 4-Methyl-1-pentinyl, 4-Methyl-2-pentinyl, 1,1-Dimethyl-2-butinyl, 1,1-Dimethyl-3-butinyl, 1,2-Dimethyl-3-butinyl, 2,2-Dimethyl-3-butinyl, 3,3-Dimethyl-1-butinyl,

25 1-Ethyl-2-butinyl, 1-Ethyl-3-butinyl, 2-Ethyl-3-butinyl und 1-Ethyl-1-methyl-2-propinyl;

Cycloalkyl: monocyclische, gesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 3 bis 5, 6, oder 8 Kohlenstoffringgliedern, z.B. C₃-C₈-Cyclo-30 alkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl und Cyclooctyl;

Bicycloalkyl: bicyclische, gesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 6 bis 14, insbesondere 7 oder 10 Kohlenstoffringgliedern, bestehend aus anneliierten 5-, 6- und/oder 7-gliederigen Ringsystemen.

5- oder 6-gliedriges Heterocyclyl (gesättigtes Heterocyclyl), enthaltend ein bis drei Stickstoffatome und/oder ein Sauerstoff-40 oder Schwefelatom oder ein oder zwei Sauerstoff- und/oder Schwefelatome, z.B. 2-Tetrahydrofuranyl, 3-Tetrahydrofuranyl, 2-Tetrahydrothienyl, 3-Tetrahydrothienyl, 2-Pyrrolidinyl, 3-Pyrrolidinyl, 3-Isoxazolidinyl, 4-Isoxazolidinyl, 5-Isoxazolidinyl, 3-Isothiazolidinyl, 4-Isothiazolidinyl, 5-Isothiazolidinyl, 3-Pyrazolidinyl, 4-Pyrazolidinyl, 5-Pyrazolidinyl, 2-Oxazolidinyl, 4-Oxazolidinyl, 5-Oxazolidinyl, 2-Thiazolidinyl, 4-Thiazolidinyl, 5-Thiazolidinyl, 2-Imidazolidinyl, 4-Imidazo-

lidinyl, 2-Pyrrolin-2-yl, 2-Pyrrolin-3-yl, 3-Pyrrolin-2-yl,
 3-Pyrrolin-3-yl, 2-Piperidinyl, 3-Piperidinyl, 4-Piperidinyl,
 1,3-Dioxan-5-yl, 2-Tetrahydropyranyl, 4-Tetrahydropyranyl,
 2-Tetrahydrothienyl, 3-Hexahydropyridazinyl, 4-Hexahydropyridazi-
 5 nyl, 2-Hexahydropyrimidinyl, 4-Hexahydropyrimidinyl, 5-Hexahydro-
 pyrimidinyl und 2-Piperazinyl;

5- oder 6-gliedriges Heterocyclyl (ungesättigtes Heterocyclyl), enthaltend ein bis drei Stickstoffatome und/oder ein Sauerstoff-
 10 oder Schwefelatom oder ein oder zwei Sauerstoff- und/oder Schwefelatome und eine oder zwei C=C-Doppelbindungen, z.B.
 3,6-Dihydro-2H-pyridin-1-yl oder 2,5-Dihydropyrrol-1-yl;

5-gliedriges Heteroaryl (aromatices Heterocyclyl), enthaltend
 15 ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom: 5-Ring Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom als Ringglieder enthalten können, z.B. 2-Furyl, 3-Furyl,
 20 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyrrolyl, 3-Pyrrolyl, 3-Pyrazolyl,
 4-Pyrazolyl, 5-Pyrazolyl, 2-Oxazolyl, 4-Oxazolyl, 5-Oxazolyl,
 2-Thiazolyl, 4-Thiazolyl, 5-Thiazolyl, 2-Imidazolyl,
 4-Imidazolyl, und 1,3,4-Triazol-2-yl;

25 6-gliedriges Heteroaryl (aromatices Heterocyclyl), enthaltend ein bis drei bzw. ein bis vier Stickstoffatome: 6-Ring Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen ein bis drei bzw. ein bis vier Stickstoffatome als Ringglieder enthalten können, z.B. 2-Pyridinyl, 3-Pyridinyl, 4-Pyridinyl, 3-Pyridazinyl,
 30 4-Pyridazinyl, 2-Pyrimidinyl, 4-Pyrimidinyl, 5-Pyrimidinyl und 2-Pyrazinyl;

Oxyalkylenoxy: divalente unverzweigte Ketten aus 1 bis 3 CH₂-Gruppen, wobei beide Valenzen über ein Sauerstoffatom an das
 35 Gerüst gebunden ist, z.B. OCH₂O, OCH₂CH₂O und OCH₂CH₂CH₂O;

Die Verbindungen der Formel I können auch in Form ihrer landwirtschaftlich brauchbaren Salze vorliegen, wobei es in der Regel nicht auf die Art des Salzes ankommt. Im Allgemeinen kommen die
 40 Salze derjenigen Kationen oder die Säureadditionssalze derjenigen Säuren in Betracht, deren Kationen beziehungsweise Anionen die fungizide Wirkung der Verbindungen I nicht negativ beeinträchtigen.

45 Es kommen als Kationen insbesondere Ionen der Alkalimetalle, vorzugsweise Lithium, Natrium und Kalium, der Erdalkalimetalle, vorzugsweise Calcium und Magnesium, und der Übergangsmetalle, vor-

zugsweise Mangan, Kupfer, Zink und Eisen, sowie Ammonium, wobei hier gewünschtenfalls ein bis vier Wasserstoffatome durch C₁-C₄-Alkyl, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Hydroxy-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Phenyl oder Benzyl ersetzt sein können, vorzugsweise Ammonium, Dimethylammonium, Diisopropylammonium, Tetramethylammonium, Tetrabutylammonium, 2-(2-Hydroxyeth-1-oxy)eth-1-ylammonium, Di(2-hydroxyeth-1-yl)ammonium, Trimethylbenzylammonium, des weiteren, Phosphoniumionen, Sulfoniumionen, vorzugsweise Tri(C₁-C₄-alkyl)sulfonium und Sulfoxoniumionen, vorzugsweise Tri(C₁-C₄-alkyl)sulfoxonium, in Betracht.

Anionen von brauchbaren Säureadditionssalzen sind in erster Linie Chlorid, Bromid, Fluorid, Hydrogensulfat, Sulfat, Dihydrogenphosphat, Hydrogenphosphat, Nitrat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Hexaflourosilikat, Hexafluorophosphat, Benzoat sowie die Anionen von C₁-C₄-Alkansäuren, vorzugsweise Formiat, Acetat, Propionat und Butyrat.

Sofern R¹ und/oder R² ein Chiralitätszentrum aufweist, sind die (R)- und (S)-Isomere und die Razemate der Verbindungen der Formel I in den Umfang der Erfindung eingeschlossen.

Die besonders bevorzugten Ausführungsformen der Zwischenprodukte in Bezug auf die Variablen entsprechen denen der Reste R³ und X der Formel I.

Im Hinblick auf ihre bestimmungsgemäße Verwendung der 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine der Formel I sind die folgenden Bedeutungen der Substituenten, und zwar jeweils für sich allein oder in Kombination, besonders bevorzugt:

Verbindungen I sind bevorzugt, in denen R¹ und R² für Wasserstoff, C₁-C₁₀-Alkyl oder C₁-C₆-Haloalkyl, insbesondere für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Haloalkyl, besonders bevorzugt für Wasserstoff, 35 1-Methylpropyl, Isopropyl oder 1,1,1-Trifluor-2-propyl steht.

Bevorzugt sind auch Verbindungen I, in denen R¹ und R² zusammen mit dem Stickstoffatom, das sie verbindet, einen 5-oder 6-gliedrigen Ring bilden, der ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann, wie Pyrrolidin-1-yl, Pyrrol-1-yl, Pyrazol-1-yl, Imidazol-1-yl, Piperidin-1-yl, Morpholin-4-yl, Thiomorpholin-4-yl, 3,6-Dihydro-2H-pyridin-1-yl, 2,5-Dihydropyrrol-1-yl, wobei die genannten Reste durch eine bis drei Gruppen R^a, insbesondere durch C₁-C₄-Alkyl, wie beispielsweise Methyl oder Ethyl, substituiert sein können. Besonders bevorzugt sind Verbindungen I, in denen R¹ und R² gemeinsam eine 4-Methylpiperidin-1-yl-Gruppe bilden.

10

Insbesondere bevorzugt werden Verbindungen I, in denen R¹ nicht Wasserstoff bedeutet.

Daneben werden auch Verbindungen I besonders bevorzugt, in denen 5 R¹ Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl oder C₁-C₄-Haloalkyl und R² Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl, insbesondere Wasserstoff, bedeutet.

Weiterhin werden Verbindungen I bevorzugt, in denen R¹ und R² 10 keine Gruppen R^b tragen, insbesondere solche, in denen R¹ und R² keine Gruppen R^a tragen.

Ein weiterer bevorzugter Gegenstand sind Verbindungen I, in denen R¹ und R² Wasserstoff bedeuten.

15 Besonders werden auch Verbindungen I bevorzugt, in denen R³ C₃-C₁₂-Cycloalkyl, bevorzugt Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclooctyl oder Cyclododecyl oder Bicycloheptyl bedeuten, wobei R³ ggf. eine bis drei Gruppen R^a tragen kann. Insbesondere ist R³ unsubstituiert.

20

Außerdem werden Verbindungen I besonders bevorzugt, in denen X für C₁-C₄-Alkyl, insbesondere Methyl steht.

25 Insbesondere sind im Hinblick auf ihre Verwendung die in den folgenden Tabellen zusammengestellten Verbindungen I bevorzugt. Die in den Tabellen für einen Substituenten genannten Gruppen stellen außerdem für sich betrachtet, unabhängig von der Kombination, in der sie genannt sind, eine besonders bevorzugte Ausgestaltung des betreffenden Substituenten dar.

30

Tabelle 1

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopropyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

35

Tabelle 2

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopropyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

Tabelle 3

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopropyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

5

Tabelle 4

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopropyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

10

Tabelle 5

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopentyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

15

Tabelle 6

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopentyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

20

Tabelle 7

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopentyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

25

Tabelle 8

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclopentyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

30

Tabelle 9

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclohexyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

35

Tabelle 10

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclohexyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

Tabelle 11

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclohexyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

Tabelle 12

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclohexyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

5 Tabelle 13

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cycloheptyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

5

10 Tabelle 14

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cycloheptyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

10

15 Tabelle 15

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cycloheptyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

15

20 Tabelle 16

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cycloheptyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

20

25 Tabelle 17

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclooctyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

25

30 Tabelle 18

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclooctyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

30

35 Tabelle 19

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclooctyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

35

40 Tabelle 20

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclooctyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

45 Tabelle 21

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclododecyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

Tabelle 22

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclododecyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

5

Tabelle 23

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclododecyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

10

Tabelle 24

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Cyclododecyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

15

Tabelle 25

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Bicyclo[2.2.1]hept-2-yl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

20

Tabelle 26

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Bicyclo[2.2.1]hept-2-yl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

25

Tabelle 27

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Bicyclo[2.2.1]hept-2-yl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

30

Tabelle 28

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für Bicyclo[2.2.1]hept-2-yl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A ent-

35 spricht

Tabelle 29

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclopentyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

Tabelle 30

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclopentyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

5 Tabelle 31

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclopentyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

5

10 Tabelle 32

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclopentyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

10

15 Tabelle 33

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclopentyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

15

20 Tabelle 34

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclopentyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

20

25 Tabelle 35

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclopentyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

25

30 Tabelle 36

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclopentyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

30

35 Tabelle 37

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclohexyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

35

40 Tabelle 38

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclohexyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

45 Tabelle 39

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclohexyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

Tabelle 40

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 2-Methylcyclohexyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

5

Tabelle 41

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclohexyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

10

Tabelle 42

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclohexyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

15

Tabelle 43

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclohexyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

20

Tabelle 44

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 3-Methylcyclohexyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

25

Tabelle 45

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 4-Methylcyclohexyl, X für Methyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

30

Tabelle 46

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 4-Methylcyclohexyl, X für Ethyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

35

Tabelle 47

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 4-Methylcyclohexyl, X für n-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

40

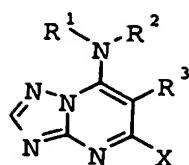
Tabelle 48

Verbindungen der Formel I, in denen R³ für 4-Methylcyclohexyl, X für iso-Propyl steht und die Kombination der Reste R¹ und R² für eine Verbindung jeweils einer Zeile der Tabelle A entspricht

45

Tabelle A

5



I

No.	R ¹	R ²
A-1	H	H
A-2	CH ₂ CH ₃	H
A-3	CH ₂ CH ₃	CH ₃
A-4	CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₃
A-5	CH ₂ CF ₃	H
A-6	CH ₂ CF ₃	CH ₃
A-7	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₃
A-8	CH ₂ CCl ₃	H
A-9	CH ₂ CCl ₃	CH ₃
A-10	CH ₂ CCl ₃	CH ₂ CH ₃
A-11	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H
A-12	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃
A-13	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₃
A-14	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₃
A-15	CH(CH ₃) ₂	H
A-16	CH(CH ₃) ₂	CH ₃
A-17	CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CH ₃
A-18	(R/S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	H
A-19	(R/S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₃
A-20	(R/S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₃
A-21	(R) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	H
A-22	(R) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₃
A-23	(R) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₃
A-24	(S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	H
A-25	(S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₃
A-26	(S) CH(CH ₃) -CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₃
A-27	(R/S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	H
A-28	(R/S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₃
A-29	(R/S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CH ₃
A-30	(R) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	H
A-31	(R) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₃
A-32	(R) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CH ₃
A-33	(S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	H
A-34	(S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₃
A-35	(S) CH(CH ₃) -CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CH ₃
A-36	(R/S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	H
A-37	(R/S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₃
A-38	(R/S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₂ CH ₃

No.	R ¹	R ²
A-39	(R) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	H
A-40	(R) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₃
A-41	(R) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₂ CH ₃
5 A-42	(S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	H
A-43	(S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₃
A-44	(S) CH(CH ₃) -C(CH ₃) ₃	CH ₂ CH ₃
A-45	(R/S) CH(CH ₃) -CF ₃	H
10 A-46	(R/S) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₃
A-47	(R/S) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₂ CH ₃
A-48	(R) CH(CH ₃) -CF ₃	H
A-49	(R) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₃
A-50	(R) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₂ CH ₃
15 A-51	(S) CH(CH ₃) -CF ₃	H
A-52	(S) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₃
A-53	(S) CH(CH ₃) -CF ₃	CH ₂ CH ₃
A-54	(R/S) CH(CH ₃) -CCl ₃	H
A-55	(R/S) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₃
20 A-56	(R/S) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₂ CH ₃
A-57	(R) CH(CH ₃) -CCl ₃	H
A-58	(R) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₃
A-59	(R) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₂ CH ₃
A-60	(S) CH(CH ₃) -CCl ₃	H
25 A-61	(S) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₃
A-62	(S) CH(CH ₃) -CCl ₃	CH ₂ CH ₃
A-63	CH ₂ CF ₂ CF ₃	H
A-64	CH ₂ CF ₂ CF ₃	CH ₃
30 A-65	CH ₂ CF ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₃
A-66	CH ₂ (CF ₂) ₂ CF ₃	H
A-67	CH ₂ (CF ₂) ₂ CF ₃	CH ₃
A-68	CH ₂ (CF ₂) ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₃
A-69	CH ₂ C(CH ₃)=CH ₂	H
35 A-70	CH ₂ C(CH ₃)=CH ₂	CH ₃
A-71	CH ₂ C(CH ₃)=CH ₂	CH ₂ CH ₃
A-72	cyclopentyl	H
A-73	cyclopentyl	CH ₃
40 A-74	cyclopentyl	CH ₂ CH ₃
A-75	cyclohexyl	H
A-76	cyclohexyl	CH ₃
A-77	cyclohexyl	CH ₂ CH ₃
A-78	- (CH ₂) ₄ -	
45 A-79	-CH(CH ₃)(CH ₂) ₃ -	
A-80	-CH ₂ CH(CH ₃)(CH ₂) ₂ -	
A-81	- (CH ₂) ₅ -	

No.	R ¹	R ²
A-82	-(CH ₂) ₂ CH(CH ₃)(CH ₂) ₂ -	
A-83	-CH ₂ CH(CH ₃)CH ₂ CH(CH ₃)CH ₂ -	
A-84	-(CH ₂) ₂ CH=CHCH ₂ -	
5 A-85	-(CH ₂) ₂ C(CH ₃)=CHCH ₂ -	
A-86	-(CH ₂) ₂ CHF(CH ₂) ₂ -	
A-87	-(CH ₂) ₃ CHFCH ₂ -	
10 A-88	-(CH ₂) ₂ CH(CF ₃)(CH ₂) ₂ -	
A-89	-(CH ₂) ₂ O(CH ₂) ₂ -	
A-90	-(CH ₂) ₂ S(CH ₂) ₂ -	
A-91	-CH ₂ CH=CHCH ₂ -	

Die Verbindungen I eignen sich als Fungizide. Sie zeichnen sich durch eine hervorragende Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum von pflanzenpathogenen Pilzen, insbesondere aus der Klasse der *Ascomyceten*, *Deuteromyceten*, *Phycomyceten* und *Basidiomyceten*, aus. Sie sind zum Teil systemisch wirksam und können im Pflanzenschutz als Blatt- und Bodenfungizide eingesetzt werden.

20 Besondere Bedeutung haben sie für die Bekämpfung einer Vielzahl von Pilzen an verschiedenen Kulturpflanzen wie Weizen, Roggen, Gerste, Hafer, Reis, Mais, Gras, Bananen, Baumwolle, Soja, Kaffee, Zuckerrohr, Wein, Obst- und Zierpflanzen und Gemüsepflanzen wie Gurken, Bohnen, Tomaten, Kartoffeln und Kürbisgewächsen, 25 sowie an den Samen dieser Pflanzen.

Speziell eignen sie sich zur Bekämpfung folgender Pflanzenkrankheiten:

- *Alternaria*-Arten an Gemüse und Obst,
- 30 • *Bipolaris*- und *Drechslera*-Arten an Getreide, Reis und Rasen,
- *Blumeria graminis* (echter Mehltau) an Getreide,
- *Botrytis cinerea* (Grauschimmel) an Erdbeeren, Gemüse, Zierpflanzen und Reben,
- *Erysiphe cichoracearum* und *Sphaerotheca fuliginea* an Kürbisgewächsen,
- 35 • *Fusarium*- und *Verticillium*-Arten an verschiedenen Pflanzen,
- *Mycosphaerella*-Arten an Getreide, Bananen und Erdnüssen,
- *Phytophthora infestans* an Kartoffeln und Tomaten,
- *Plasmopara viticola* an Reben,
- 40 • *Podosphaera leucotricha* an Äpfeln,
- *Pseudocercospora herpotrichoides* an Weizen und Gerste,
- *Pseudoperonospora*-Arten an Hopfen und Gurken,
- *Puccinia*-Arten an Getreide,
- *Pyricularia oryzae* an Reis,
- 45 • *Rhizoctonia*-Arten an Baumwolle, Reis und Rasen,
- *Septoria tritici* und *Stagonospora nodorum* an Weizen,
- *Uncinula necator* an Reben,

- *Ustilago*-Arten an Getreide und Zuckerrohr, sowie
- *Venturia*-Arten (Schorf) an Äpfeln und Birnen.

Die Verbindungen I eignen sich außerdem zur Bekämpfung von Schad-
5 pilzen wie *Paecilomyces variotii* im Materialschutz (z.B. Holz, Papier, Dispersionen für den Anstrich, Fasern bzw. Gewebe) und im Vorratsschutz.

Die Verbindungen I werden angewendet, indem man die Pilze oder
10 die vor Pilzbefall zu schützenden Pflanzen, Saatgüter, Materialien oder den Erdboden mit einer fungizid wirksamen Menge der Wirkstoffe behandelt. Die Anwendung kann sowohl vor als auch nach der Infektion der Materialien, Pflanzen oder Samen durch die Pilze erfolgen.

15

Die fungiziden Mittel enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.-% Wirkstoff.

Die Aufwandmengen liegen bei der Anwendung im Pflanzenschutz je
20 nach Art des gewünschten Effektes zwischen 0,01 und 2 kg Wirkstoff pro ha.

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 1 g, vorzugsweise 0,01 bis 0,05 g je Kilogramm
25 Saatgut benötigt.

Bei der Anwendung im Material- bzw. Vorratsschutz richtet sich die Aufwandmenge an Wirkstoff nach der Art des Einsatzgebietes und des gewünschten Effekts. Übliche Aufwandmengen sind im Materialschutz beispielsweise 0,001 g bis 2 kg, vorzugsweise 0,005 g bis 1 kg Wirkstoff pro Kubikmeter behandelten Materials.

Die Verbindungen I können in die üblichen Formulierungen überführt werden, z.B. Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Stäube, Pulver, Pasten und Granulate. Die Anwendungsform richtet sich nach dem jeweiligen Verwendungszweck; sie soll in jedem Fall eine feine und gleichmäßige Verteilung der erfindungsgemäßen Verbindung gewährleisten.

40 Die Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirkstoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschtenfalls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln. Als Lösungsmittel / Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht:

45

Wasser, aromatische Lösungsmittel (z.B. Solvesso Produkte, Xylol), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen), Alkohole (z.B. Methanol, Butanol, Pentanol, Benzylalkohol), Ketone (z.B. Cyclohexanon, gamma-Butryolacton), Pyrrolidone (NMP, NOP), Acetate (Glykoldiacetat), Glykole, Dimethylfettsäureamide, Fettsäuren und Fettsäureester. Grundsätzlich können auch Lösungsmittelgemische verwendet werden,

Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Tonerde, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B. hochdisperse Kieselsäure, Silikate); Emulgiermittel wie nichtionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und Dispergiermittel wie Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Als oberflächenaktive Stoffe kommen Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von Ligninsulfonsäure, Naphthalinsulfonsäure, Phenolsulfonsäure, Dibutynaphthalinsulfonsäure, Alkylarylsulfonate, Alkylsulfate, Alkylsulfonate, Fettalkoholsulfate, Fettsäuren und sulfatierte Fettalkoholglykolether zum Einsatz, ferner Kondensationsprodukte von sulfonierte Naphthalin und Naphthalinderivaten mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphthalinsulfonsäure mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctylphenol, Octylphenol, Nonylphenol, Alkylphenolpolyglykolether, Tributylphenylpolyglykolether, Tristerylphenylpolyglykolether, Alkyl-arylpolyetheralkohole, Alkohol- und Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether, ethoxyliertes Polyoxypropylen, Laurylalkoholpoly-glykoletheracet, Sorbitester, Ligninsulfitablaugen und Methylcellulose in Betracht.

Zur Herstellung von direkt versprühbaren Lösungen, Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen kommen Mineralölfaktionen von mittlerem bis hohem Siedepunkt, wie Kerosin oder Dieselöl, ferner Kohlenteeröle sowie Öle pflanzlichen oder tierischen Ursprungs, aliphatische, cyclische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Toluol, Xylol, Paraffin, Tetrahydronaphthalin, alkylierte Naphthaline oder deren Derivate, Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Cyclohexanol, Cyclohexanon, Isophoron, stark polare Lösungsmittel, z.B. Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon oder Wasser in Betracht.

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

5 Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate, können durch Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe hergestellt werden. Feste Trägerstoffe sind z.B. Mineralerde, wie Kieselgele, Silikate, Talcum, Kaolin, Attaclay, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde,

10 Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie z.B. Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver und andere feste Trägerstoffe.

15

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,01 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,1 und 90 Gew.-% des Wirkstoffs. Die Wirkstoffe werden dabei in einer Reinheit von 90% bis 100%, vorzugsweise 95% bis 100% (nach NMR-Spektrum) eingesetzt.

20

Beispiele für Formulierungen sind:

1. Produkte zur Verdünnung in Wasser

25 A Wasserlösliche Konzentrate (SL)
10 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in Wasser oder einem wasserlöslichen Lösungsmittel gelöst. Alternativ werden Netzmittel oder andere Hilfsmittel zugefügt. Bei der Verdünnung in Wasser löst sich der Wirkstoff.

30

B Dispergierbare Konzentrate (DC)
20 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in Cyclohexanon unter Zusatz eines Dispergiermittels z.B. Polyvinylpyrrolidon gelöst. Bei Verdünnung in Wasser ergibt sich eine Dispersion.

35 C Emulgierbare Konzentrate (EC)
15 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in Xylol unter Zusatz von Ca-Dodecylbenzolsulfonat und Ricinus-
40 ölethoxylat (jeweils 5 %) gelöst. Bei der Verdünnung in Wasser ergibt sich eine Emulsion.

D Emulsionen (EW, EO)
40 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in Xylol unter Zusatz von Ca-Dodecylbenzolsulfonat und Ricinus-
45 ölethoxylat (jeweils 5 %) gelöst. Diese Mischung wird mittels einer Emulgiermaschine (Ultraturax) in Wasser eingebracht und

zu einer homogenen Emulsion gebracht. Bei der Verdünnung in Wasser ergibt sich eine Emulsion.

E Suspensionen (SC, OD)

5 20 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden unter Zusatz von Dispergier- und Netzmitteln und Wasser oder einem organischen Lösungsmittel in einer Rührwerkskugelmühle zu einer feinen Wirkstoffsuspension zerkleinert. Bei der Verdünnung in Wasser ergibt sich eine stabile Suspension des Wirkstoffs.

F Wasserdispersierbare und wasserlösliche Granulate (WG, SG)

15 50 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden unter Zusatz von Dispergier- und Netzmitteln fein gemahlen und mittels technischer Geräte (z.B. Extrusion, Sprühturm, Wirbelschicht) als wasserdispersierbare oder wasserlösliche Granulate hergestellt. Bei der Verdünnung in Wasser ergibt sich eine stabile Dispersion oder Lösung des Wirkstoffs.

20 G Wasserdispersierbare und wasserlösliche Pulver (WP, SP)

25 75 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden unter Zusatz von Dispergier- und Netzmitteln sowie Kieselsäuregel in einer Rotor-Strator Mühle vermahlen. Bei der Verdünnung in Wasser ergibt sich eine stabile Dispersion oder Lösung des Wirkstoffs.

2. Produkte für die Direktapplikation

H Stäube (DP)

30 5 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden fein gemahlen und mit 95 % feinteiligem Kaolin innig vermischt. Man erhält dadurch ein Stäubemittel.

I Granulate (GR, FG, GG, MG)

35 0.5 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden fein gemahlen und mit 95.5 % Trägerstoffe verbunden. Gängige Verfahren sind dabei die Extrusion, die Sprühtrocknung oder die Wirbelschicht. Man erhält dadurch ein Granulat für die Direktapplikation.

40 J ULV- Lösungen (UL)

45 10 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in einem organischen Lösungsmittel z.B. Xylol gelöst. Dadurch erhält man ein Produkt für die Direktapplikation.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, z.B. in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, 5 Streumitteln, Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich ganz nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

10

Wässrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten, Pasten oder netzbaren Pulvern (Spritzpulver, Öldispersionen) durch Zusatz von Wasser bereitet werden. Zur Herstellung von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substanzen als 15 solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel in Wasser homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung 20 mit Wasser geeignet sind.

Die Wirkstoffkonzentrationen in den anwendungsfertigen Zubereitungen können in größeren Bereichen variiert werden. Im allgemeinen liegen sie zwischen 0,0001 und 10%, vorzugsweise zwischen 25 0,01 und 1%.

Die Wirkstoffe können auch mit gutem Erfolg im Ultra-Low-Volume-Verfahren (ULV) verwendet werden, wobei es möglich ist, Formulierungen mit mehr als 95 Gew.-% Wirkstoff oder sogar den Wirkstoff 30 ohne Zusätze auszubringen.

Zu den Wirkstoffen können Öle verschiedenen Typs, Netzmittel, Adjuvants, Herbizide, Fungizide, andere Schädlingsbekämpfungsmittel, Bakterizide, gegebenenfalls auch erst unmittelbar vor der 35 Anwendung (Tankmix), zugesetzt werden. Diese Mittel können zu den erfindungsgemäßen Mitteln im Gewichtsverhältnis 1:10 bis 10:1 zugemischt werden.

Die erfindungsgemäßen Mittel können in der Anwendungsform als 40 Fungizide auch zusammen mit anderen Wirkstoffen vorliegen, der z.B. mit Herbiziden, Insektiziden, Wachstumsregulatoren, Fungiziden oder auch mit Düngemitteln. Beim Vermischen der Verbindungen I bzw. der sie enthaltenden Mittel in der Anwendungsform als Fungizide mit anderen Fungiziden erhält man in vielen Fällen eine 45 Vergrößerung des fungiziden Wirkungsspektrums.

Die folgende Liste von Fungiziden, mit denen die erfindungsgemäßen Verbindungen gemeinsam angewendet werden können, soll die Kombinationsmöglichkeiten erläutern, nicht aber einschränken:

- 5 · Acylalanine wie Benalaxyl, Metalaxyl, Ofurace, Oxadixyl,
 - Aminderivate wie Aldimorph, Dodine, Dodemorph, Fenpropimorph, Fenpropidin, Guazatine, Iminoctadine, Spiroxamin, Tridemorph
 - Anilinopyrimidine wie Pyrimethanil, Mepanipyrim oder Cyrodi-nyl,
- 10 · Antibiotika wie Cycloheximid, Griseofulvin, Kasugamycin, Natamycin, Polyoxin oder Streptomycin,
 - Azole wie Bitertanol, Bromoconazol, Cyproconazol, Difenoconazole, Dinitroconazol, Epoxiconazol, Fenbuconazol, Fluquiconazol, Flusilazol, Hexaconazol, Imazalil, Metconazol, Myclobutanil, Penconazol, Propiconazol, Prochloraz, Prothioconazol, Tebuconazol, Triadimefon, Triadimenol, Triflumizol, Triticonazol,
 - Dicarboximide wie Iprodion, Myclozolin, Procymidon, Vinclozolin,
- 15 · Dithiocarbamate wie Ferbam, Nabam, Maneb, Mancozeb, Metam, Metiram, Propineb, Polycarbamat, Thiram, Ziram, Zineb,
 - Heterocyclische Verbindungen wie Anilazin, Benomyl, Boscalid, Carbendazim, Carboxin, Oxycarboxin, Cyazofamid, Dazomet, Dithianon, Famoxadon, Fenamidon, Fenarimol, Fuberidazol, Flutolanil, Furametpyr, Isoprothiolan, Mepronil, Nuarimol, Probenazol, Proquinazid, Pyrifenoxy, Pyroquilon, Quinoxyfen, Silt-hiofam, Thiabendazol, Thifluzamid, Thiophanat-methyl, Tiadnil, Tricyclazol, Triforine,
- 20 · Kupferfungizide wie Bordeaux Brühe, Kupferacetat, Kupferoxychlorid, basisches Kupfersulfat,
- 25 · Nitrophenylderivate, wie Binapacryl, Dinocap, Dinobuton, Nitrophthal-isopropyl
 - Phenylpyrrole wie Fenpiclonil oder Fludioxonil,
 - Schwefel
- 30 · Sonstige Fungizide wie Acibenzolar-S-methyl, Benthiavalicarb, Carpropamid, Chlorothalonil, Cyflufenamid, Cymoxanil, Dazomet, Diclomezin, Diclofencarb, Edifenphos, Ethaboxam, Fenhexamid, Fentin-Aacetat, Fenoxanil, Ferimzone, Fluazinam, Fosetyl, Fosetyl-Aluminium, Iprovalicarb, Hexachlorbenzol, Metrafenon, Pencycuron, Propamocarb, Phthalid, Toloclofos-methyl, Quintozene, Zoxamid
- 35 · Strobilurine wie Azoxystrobin, Dimoxystrobin, Fluoxastrobin, Kresoxim-methyl, Metominostrobin, Orysastrobin, Picoxystrobin, Pyraclostrobin oder Trifloxystrobin,
- 40 · Sulfensäurederivate wie Captafol, Captan, Dichlofluanid, Folpet, Tolyfluanid

- Zimtsäureamide und Analoge wie Dimethomorph, Flumetover oder Flumorph.

Synthesebeispiele

5

Die in den nachstehenden Synthesebeispielen wiedergegebenen Vorschriften wurden unter entsprechender Abwandlung der Ausgangsverbindungen zur Gewinnung weiterer Verbindungen I benutzt. Die so erhaltenen Verbindungen sind in der anschließenden Tabelle mit 10 physikalischen Angaben aufgeführt.

Beispiel 1 Herstellung von 2-Cyclopentyl-3-oxobutylsäureethyl-ester

15 Eine Mischung von 3-Oxobutylsäure ethylester (0,5 mol), Cyclopentylbromid (0,5 mol) und Natriummethoxylat (0,5 mol) in Ethanol (100 ml) wurde 15 Std. refluxiert. Nach Abkühlen der Reaktionsmischung auf etwa 20 bis 25°C wurden 71g der Titelverbindung durch Destillation (96-100°C, 0,25 mbar) isoliert.

20

Beispiel 2 Herstellung von 5-Methyl-6-cyclopentyl-7-hydroxy-[1,2,4]-triazolo[1,5-a]-pyrimidin

25 Eine Mischung von 3-Amino-1,2,4-triazol (14 g), 2-Cyclopentyl-3-oxobutylsäureethylester (0,17 mol, Bsp. 1) und Tributylamin (50 ml) wurde für 6 Std. auf 180°C erhitzt. Nach Abkühlen der Reaktionsmischung auf etwa 70°C wurde wässr. NaOH-Lösung (21g in 200 ml H₂O) zugesetzt und die Lösung weitere 30 min gerührt. Nach Phasentrennung und Extraktion mit Diethylether wurde die wässrige 30 Phase mit konz. HCl-Lösung angesäuert. Aus dem Niederschlag erhielt man 19g der Titelverbindung.

Beispiel 3 Herstellung von 5-Methyl-6-cyclopentyl-7-chlor-[1,2,4]-triazolo[1,5-a]-pyrimidin

35

Eine Mischung von 5-Methyl-6-cyclopentyl-7-hydroxy-[1,2,4]-triazolo-[1,5-a]pyrimidin (17 g, Bsp. 2) und POCl₃ (50 ml) wurde 8 Std. refluxiert. Dabei destillierte ein Teil des POCl₃ ab. Der Rückstand wurde in ein Dichlormethan/Wasser-Gemisch gegeben. Die 40 organische Phase wurde abgetrennt und getrocknet. Nach Abtrennen des Lösungsmittels erhielt man 11g der Titelverbindung vom Fp. 87°C.

Beispiel 4 Herstellung von 5-Methyl-6-cyclopentyl-7-(4-methyl-piperidin-1-yl)-[1,2,4]-triazolo[1,5-a]pyrimidin [I-1]

5 Eine Lösung von 4-Methylpiperidin (1,5 mmol) und Triethylamin (1,5 mmol) 10 ml Dichlormethan wurde unter Rühren zu einer Lösung von 5-Methyl-6-cyclopentyl-7-chlor-[1,2,4]-triazolo[1,5-a]-pyrimidin (1,5 mmol, Bsp. 3) in 20ml Dichlormethan gegeben. Die Reaktionsmischung wurde etwa 16 Std. bei 20 bis 25°C gerührt, dann mit 10 5%iger HCl-Lösung gewaschen. Die organische Phase wurde abgetrennt und getrocknet. Nach Abdestillieren des Lösungsmittels und Chromatographie an Kieselgel wurden daraus 0,26g der Titelverbindung vom Fp. 145°C erhalten.

15 Tabelle I: Verbindungen der Formel I

Nr.	R ¹	R ²	R ³	X	phys. Daten (Fp. [°C]; IR [cm ⁻¹])
I-1	-(CH ₂) ₂ CH(CH ₃)(CH ₂) ₂ -		Cyclopentyl	CH ₃	145
I-2	(R) CH(CH ₃)-CH(CH ₃) ₂	H	Cyclopentyl	CH ₃	96
I-3	(S) CH(CH ₃)-CF ₃	H	Cyclopentyl	CH ₃	108
I-4	H	H	Cyclopentyl	CH ₃	271
I-5	CH ₃	H	Cyclopentyl	CH ₃	175
I-6	(R) CH(CH ₃)-C(CH ₃) ₃	H	Cyclopentyl	CH ₃	1960; 1605; 1590; 1240

Beispiele für die Wirkung gegen Schadpilze

30 Die fungizide Wirkung der Verbindungen der Formel I ließ sich durch die folgenden Versuche zeigen:

Die Wirkstoffe wurden getrennt als Stammlösung formuliert mit 35 0,25 Gew.-% Wirkstoff in Aceton oder DMSO. Dieser Lösung wurde 1 Gew.-% Emulgator Uniperol® EL (Netzmittel mit Emulgier- und Dispergierwirkung auf der Basis ethoxylierter Alkylphenole) zugesetzt. Die Stammlösungen der Wirkstoffe wurden entsprechend der angegebenen Konzentration mit Wasser verdünnt.

40 Beispiel 1: Wirksamkeit gegen die Dürrfleckenkrankheit der Tomate verursacht durch *Alternaria solani*

Blätter von Topfpflanzen der Sorte "Große Fleischtomate St. 45 Pierre" wurden mit einer wässriger Suspension in der unten angegebenen Wirkstoffkonzentration bis zur Tropfnässe besprüht. Am folgenden Tag wurden die Blätter mit einer wässrigen Sporenauf-

schwemmung von *Alternaria solani* in 2 % Biomalzlösung mit einer Dichte von $0,17 \times 10^6$ Sporen/ml infiziert. Anschließend wurden die Pflanzen in einer wasserdampfgesättigten Kammer bei Temperaturen zwischen 20 und 22°C aufgestellt. Nach 5 Tagen hatte sich die 5 Krautfäule auf den unbehandelten, jedoch infizierten Kontrollpflanzen so stark entwickelt, dass der Befall visuell in % ermittelt werden konnte.

In diesem Test zeigten die mit 250 ppm des Wirkstoffs I-1 behandelten 10 Pflanzen keinen Befall, während die unbehandelten Pflanzen zu 90% befallen war.

Beispiel 2: Wirksamkeit gegen den Grauschimmel an Paprikablättern verursacht durch *Botrytis cinerea* bei protektiver Anwendung 15

Paprikasämlinge der Sorte "Neusiedler Ideal Elite" wurden, nachdem sich 4 - 5 Blätter gut entwickelt hatten, mit einer wässrigen Suspension in der unten angegebenen Wirkstoffkonzentration bis zur Tropfnässe besprüht. Am nächsten Tag wurden die behandelten 20 Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Botrytis cinerea*, die $1,7 \times 10^6$ Sporen/ml in einer 2 %-igen wässrigen Biomalzlösung enthielt, inokuliert. Anschließend wurden die Versuchspflanzen in eine Klimakammer mit 22 bis 24°C und hoher Luftfeuchtigkeit gestellt. Nach 5 Tagen konnte das Ausmaß des Pilzbefalls auf den 25 Blättern visuell in % ermittelt werden.

In diesem Test zeigten die mit 250 ppm der Wirkstoffe I-1, bzw. I-3 behandelten Pflanzen maximal 20% Befall, während die unbehandelten Pflanzen zu 90% befallen waren. 30

Beispiel 3 - Wirksamkeit gegen Mehltau an Gurkenblättern verursacht durch *Sphaerotheca fuliginea* bei protektiver Anwendung

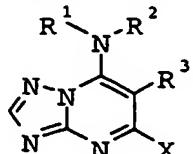
Blätter von in Töpfen gewachsenen Gurkenkeimlingen der Sorte 35 "Chinesische Schlange" wurden im Keimblattstadium mit wässriger Suspension in der unten angegebenen Wirkstoffkonzentration bis zur Tropfnässe besprüht. 20 Stunden nach dem Antrocknen des Spritzbelages wurden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Gurkemehltaus (*Sphaerotheca fuliginea*) inokuliert. Anschließend wurden die Pflanzen im Gewächshaus bei Temperaturen zwischen 20 und 24°C und 60 bis 80 % relativer Luftfeuchtigkeit für 7 Tage kultiviert. Dann wurde das Ausmaß der Mehltauentwicklung visuell in %-Befall der Keimblattfläche ermittelt.

45 In diesem Test zeigten die mit 250 ppm der Wirkstoffe I-1, bzw. I-3 behandelten Pflanzen nicht über 3% Befall, während die unbehandelten Pflanzen zu 90% befallen waren.

Patentansprüche

1. 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine der Formel I,

5



I

10 in der die Substituenten die folgenden Bedeutungen haben:

15 R^1, R^2 Wasserstoff, C_1-C_{10} -Alkyl, C_2-C_{10} -Alkenyl, C_2-C_{10} -Alkinyl, C_1-C_{10} -Haloalkyl, C_3-C_8 -Cycloalkyl, Phenyl, Naphthyl; oder

15

20 5- oder 6-gliedriges gesättigtes, ungesättigtes oder aromatisches Heterocyclyl, enthaltend ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom; oder

20

25 R^1 und R^2 können zusammen mit dem Stickstoffatom, das sie verbindet, einen 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom enthält;

30

30 R^1 und R^2 können, wenn ungleich Wasserstoff, unabhängig voneinander teilweise oder vollständig halogeniert sein und/oder einen bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen

35

35 R^a Cyano, Nitro, Hydroxy, C_1-C_6 -Alkyl, C_1-C_6 -Haloalkyl, C_3-C_6 -Cycloalkyl, C_1-C_6 -Alkoxy, C_1-C_6 -Haloalkoxy, C_1-C_6 -Alkylthio, C_1-C_6 -Alkylamino, Di- C_1-C_6 -alkylamino, C_2-C_6 -Alkenyl, C_2-C_6 -Alkenyloxy, C_2-C_6 -Alkinyl, C_3-C_6 -Alkinyloxy und gegebenenfalls halogeniertes Oxy- C_1-C_4 -alkylenoxy;

40

40 wobei diese aliphatischen oder alicyclischen Gruppen ihrerseits partiell oder vollständig halogeniert sein oder eine bis drei Gruppen R^b tragen können:

45

45 R^b Halogen, Cyano, Nitro, Hydroxy, Mercapto, Amino, Carboxyl, Aminocarbonyl, Aminothiocarbonyl, Alkyl, Haloalkyl, Alkenyl, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino, Formyl, Alkylcarbo-

nyl, Alkylsulfonyl, Alkylsulfoxyl, Alkoxy carbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Alkylaminothiocarbonyl, Dialkylaminothiocarbonyl, wobei die Alkylgruppen in diesen Resten 1 bis 6 Kohlenstoffatome enthalten und die genannten Alkenyl- oder Alkinylgruppen in diesen Resten 2 bis 8 Kohlenstoffatome enthalten;

10 und/oder einen bis drei der folgenden Reste:

25 R³ C₃-C₁₄-Cycloalkyl oder C₆-C₁₄-Bicycloalkyl, wobei R³ unsubstituiert oder teilweise oder vollständig halogeniert sein kann und/oder ein bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen kann; und

30 X C₁-C₆-Alkyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl;
sowie deren Salze.

2. 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidine der Formel I gemäß Anspruch 1, in der die Substituenten die folgenden Bedeutungen haben:

35 R^1, R^2 Wasserstoff, C₁-C₁₀-Alkyl, C₂-C₁₀-Alkenyl, C₂-C₁₀-Alki-
nyl, C₁-C₁₀-Haloalkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl, Phenyl, Naph-
thyl; oder

40 5- oder 6-gliedriges gesättigtes, ungesättigtes oder aromatisches Heterocycl, enthaltend ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom; oder

45 R¹ und R² können zusammen mit dem Stickstoffatom, das sie verbindet, einen 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der ein bis vier Stickstoffatome oder ein bis drei

Stickstoffatome und ein Schwefel- oder Sauerstoffatom enthält;

5 R¹ und R² können, wenn ungleich Wasserstoff, unabhängig voneinander teilweise oder vollständig halogeniert sein und/oder einen bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen

10 R^a Cyano, Nitro, Hydroxy, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Haloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Haloalkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylamino, Di-C₁-C₆-alkylamino, C₂-C₆-Alkenyl, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyl, C₃-C₆-Alkinyloxy und gegebenenfalls halogeniertes Oxy-C₁-C₄-alkylenoxy;

15 R³ C₃-C₁₄-Cycloalkyl oder C₆-C₁₄-Bicycloalkyl, wobei R³ unsubstituiert oder teilweise oder vollständig halogeniert sein kann und/oder ein bis drei Reste aus der Gruppe R^a tragen kann; und

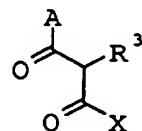
20 X C₁-C₆-Alkyl;

sowie deren Salze.

3. Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2, in der X 25 für Methyl steht.

4. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man Dicarbonylverbindungen der Formel II

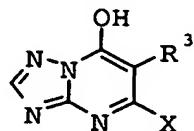
30



II

wobei A für C₁-C₁₀-Alkoxy und R³ und X wie für Formel I definiert ist, mit 3-Amino-1,2,4-triazol zu 7-Hydroxytriazolopyrimidinen der Formel III

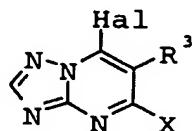
40



III

cyclisiert und III mit einem Halogenierungsmittel zu 7-Halo-41 gentriazolopyrimidinen der Formel IV

45

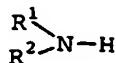


IV

31

halogeniert, wobei Hal für Halogen steht, und anschließend mit einem Amin der Formel V

5



V

worin R^1 und R^2 wie in Formel I definiert sind, zu 5-Alkyl-7-aminotriazolopyrimidinen der Formel I umsetzt.

10 5. Verbindungen der Formeln III und IV wie in Anspruch 4 definiert.

6. Zur Bekämpfung von phytopathogenen Schadpilzen geeignetes Mittel, enthaltend einen festen oder flüssigen Trägerstoff 15 und eine Verbindung der Formel I gemäß Anspruch 1.

7. Saatgut, enthaltend eine Verbindung der Formel I gemäß Anspruch 1 in einer Menge von 0,001 bis 1 g/kg.

20 8. Verwendung der Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1 zur Herstellung eines zur Bekämpfung von Schadpilzen geeigneten Mittels.

25 9. Verfahren zur Bekämpfung von phytopathogenen Schadpilzen, dadurch gekennzeichnet, daß man die Pilze oder die vor Pilzbefall zu schützenden Materialien, Pflanzen, den Boden oder Saatgüter mit einer wirksamen Menge der Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1 behandelt.

30

35

40

45

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal
PCT/03/12277

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C07D487/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 02/083677 A (GRAMMENOS WASSILIOS ; RHEINHEIMER JOACHIM (DE); BASF AG (DE); GEWEHR M) 24 October 2002 (2002-10-24) Seite 1, Formel I page 10, line 18 - page 11, line 12 ----- EP 0 141 317 A (BASF AG) 15 May 1985 (1985-05-15) cited in the application Seite 1, Formel I Seite 9, Tabelle, Verb. Nr. 9 page 10, line 34 - page 11, line 2 -----	1-9
A		1-9

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 16 March 2004	Date of mailing of the international search report 24/03/2004
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Hoepfner, W

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal

Application No

PCT

03/12277

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 02083677	A 24-10-2002	WO EP	02083677 A1 1381610 A1	24-10-2002 21-01-2004
EP 0141317	A 15-05-1985	DE AT AU AU CA CS DD DE EP HU IL JP NZ PL US US	3338292 A1 32077 T 566960 B2 3452684 A 1242715 A1 248724 B2 232635 A5 3468878 D1 0141317 A2 36328 A2 73258 A 60104089 A 209936 A 250093 A2 RE32676 E 4617303 A	02-05-1985 15-02-1988 05-11-1987 26-04-1985 04-10-1988 12-02-1987 05-02-1986 25-02-1988 15-05-1985 30-09-1985 30-11-1987 08-06-1985 31-03-1987 16-07-1985 24-05-1988 14-10-1986

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internat Aktenzeichen
PCT 03/12277

A. Klassifizierung des Anmeldungsgegenstandes
IPK 7 C07D487/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 02/083677 A (GRAMMENOS WASSILIOS ; RHEINHEIMER JOACHIM (DE); BASF AG (DE); GEWEHR M) 24. Oktober 2002 (2002-10-24) Seite 1, Formel I Seite 10, Zeile 18 – Seite 11, Zeile 12 -----	1-9
A	EP 0 141 317 A (BASF AG) 15. Mai 1985 (1985-05-15) in der Anmeldung erwähnt Seite 1, Formel I Seite 9, Tabelle, Verb. Nr. 9 Seite 10, Zeile 34 – Seite 11, Zeile 2 -----	1-9

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem Internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

16. Maerz 2004

Absendedatum des Internationalen Recherchenberichts

24/03/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Hoepfner, W

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur gleichen Patentfamilie gehören

Internal	Zeichen
PCT/	03/12277

im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 02083677	A	24-10-2002	WO EP	02083677 A1 1381610 A1	24-10-2002 21-01-2004
EP 0141317	A	15-05-1985	DE AT AU AU CA CS DD DE EP HU IL JP NZ PL US US	3338292 A1 32077 T 566960 B2 3452684 A 1242715 A1 248724 B2 232635 A5 3468878 D1 0141317 A2 36328 A2 73258 A 60104089 A 209936 A 250093 A2 RE32676 E 4617303 A	02-05-1985 15-02-1988 05-11-1987 26-04-1985 04-10-1988 12-02-1987 05-02-1986 25-02-1988 15-05-1985 30-09-1985 30-11-1987 08-06-1985 31-03-1987 16-07-1985 24-05-1988 14-10-1986